ORSAY
Série A, N°
N° D'ordre : 264

Paris 1967

Etude expérimentale de l'influence de la diffusion inélastique sur la formation des contrastes en microscopie électronique

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en partie la thèse de Doctorat ès Sciences Physiques
enregistrée au C.N.R.S. sous le numéro A.O. 1463

Ali EL HILI

Soutenue le 19 juin 1967 à la FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY
devant le jury :

MM. A. Guinier — Président
R. Castaing — Examinateurs
J. Friedel

JOURNAL DE MICROSCOPIE

Le « Journal de Microscopie », créé en 1962, est publié par les soins de la Société Française de Microscopie électronique avec le concours du Centre National de la Recherche Scientifique.

Le « Journal de Microscopie » paraît tous les deux mois soit six numéros par an) et publie des articles originaux portant sur la microscopie et ses applications microscopie classique, électronique, ionique, X, etc...; applications à la cristallographie, à la biologie, à la métallographie, etc...). Le journal accepte des articles en *anglais* et en *allemand.*

Conseil scientifique international :

B. Afzelius, Stockholm
T.F. Anderson, Philadelphie
A. Bairati, Milan
P. Bartl, Prague
E.L. Benedetti, Amsterdam
A. Birch-Andersen, Copenhague
M. Burgos, Mendoza
A. Claude, Bruxelle
V.E. Cosslett, Cambridge
F. Guba, Budapest
E. Kellenberger, Genève
J.B. Le Poole, Delft
E.H. Mercer, Canberra
E. Ruska, Berlin
R.. Uyeda, Nagoya

Comité de rédaction :

J. André
R. Bernard
W. Bernhard
M. Bessis
R. Buvat
N. Carasso
R. Castaing
R. Couteaux
G. Dupouy
E. Fauré-Fremiet
C. Fert
S. Goldsztaub
P. Grivet
A. Guinier
F. Haguenau
P. Lépine
C. Magnan
A. Oberlin
P. Pério
F. Perrier
J. Philibert
D. Picard
A. Policard
A. Saulnier
J.P. Thiéry

Le secrétariat de rédaction est assuré par A. Oberlin et J. Philibert, la rédaction en chef par P. Favard.

ABONNEMENT

	1962, 1963 1964, 1965 (par volume)		1966		1967	
Laboratoires et Firmes ..	100, - F	21, - US $	140, - F	30, - US $	200, - F	42, - US $
Particuliers, *à titre strictement privé*	80, - F	17, - US $	100, - F	21, - US $	140, - F	30, - US $
Membres de la S.F.M.E., *à titre strictement privé*	50, - F	10,50 US $	65, - F	14, - US $	80, - F	17, - US $
Numéro séparé	20, - F	4,50 US $	30, - F	7, - US $	35, - F	8, - US $

La souscription doit être envoyée à la :
Société Française de Microscopie Electronique
Ecole Normale Supérieure — Laboratoire de Botanique
24, rue Lhomond — Paris 5e.

Le paiement peut être fait :

par chèque bancaire, ou par virement postal (C.C.P. Paris 10 797-33), établi **au nom de la Société Française de Microscopie Electronique.**
Tous ces prix sont nets de toute remise.

UNIV. LEIDEN BIBL.

J. Microscopie (1966), **5**, 669-690.

ANALYSE QUALITATIVE À HAUTE RÉSOLUTION PAR IMAGES ÉLECTRONIQUES FILTRÉES

PREMIÈRE PARTIE

Ali EL HILI

Laboratoire de Physique des Solides associé au C.N.R.S., Faculté des Sciences, 91 - Orsay

INTRODUCTION

Le phénomène de pertes d'énergie des électrons à travers la matière, a été mis en évidence bien avant la mise au point du microscope électronique. Les premières observations sont dues à Becker (1) qui constata, qu'en bombardant une cible avec des électrons incidents de 200 eV, les électrons réfléchis subissaient des pertes d'énergie de quelques eV. Mais c'est Rudberg (29) qui le premier découvrit que les pertes d'énergie subies par les électrons réfléchis par une cible étaient caractéristiques de la nature de cette cible; il étudia ainsi plusieurs métaux et même certains gaz. Cependant ces mesures étaient peu précises, en effet Rudberg utilisait un système dispersif magnétique à faible rayon de courbure (25 mm), et mesurait le courant électronique à l'aide d'une cage de Faraday reliée à un électromètre, l'énergie des électrons incidents variant de 40 à 900 eV. Ruthemann (32) utilisant un analyseur magnétique semi-circulaire de 125 mm de rayon et des électrons incidents d'énergie variant de 2 à 8 keV, a pu obtenir une résolution en énergie nettement supérieure à celle de ses prédécesseurs. Des spectres de pertes d'énergie obtenus par transmission à travers des couches minces métalliques et enregistrées sur des plaques photographiques,

* Cet article fait partie d'un travail de recherches qui constitue une Thèse de doctorat ès-Sciences physiques à soutenir auprès de la Faculté des Sciences d'Orsay, Université de Paris, au courant de l'année universitaire 1966-1967.

lui ont permis de mettre en évidence, pour la première fois, le caractère discret des pertes d'énergie et le fait qu'elles possèdent des valeurs multiples de celles de la première perte, ce qui implique que l'électron qui traverse la couche étudiée peut interagir avec elle plusieurs fois de suite, perdant à chaque fois la même énergie. D'autre part, en examinant des films minces de collodion, Ruthemann (33) a pu observer des pertes d'énergie lointaines correspondant à l'excitation d'électrons des niveaux K du carbone (291 eV) et de l'oxygène (543 eV) contenus dans la couche de collodion. Les expériences de Ruthemann ont été reprises par plusieurs expérimentateurs qui ont employé des énergies de l'ordre de celles que l'on utilise en microscopie électronique, Hillier (14), Marton (19).

En 1949, Möllenstedt (21) a mis à profit les propriétés de la lentille électrostatique à trois électrodes pour construire un analyseur de vitesses. En effet, une telle lentille fonctionne en régime transgaussien, lorsque son électrode centrale est portée à un potentiel légèrement plus négatif que celui de la cathode. La lentille possède alors une très grande sensibilité chromatique permettant d'obtenir des spectres de pertes d'énergie où la résolution atteint 1 eV pour une énergie de 35 000 eV (1955). En fait une résolution de l'ordre de 1 eV constitue pratiquement une limite dans un analyseur classique; en effet le faisceau d'électrons qui aborde l'échantillon n'est pas monochromatique, les électrons émis par un canon ordinaire de microscope électronique ayant une dispersion de 1 eV environ. Cette dispersion peut être limitée par l'emploi d'une cathode à oxydes, ce qui fait gagner quelques dixièmes d'eV en résolution dans l'analyseur. Le problème de la résolution en énergie est donc lié pour une grande part à la dispersion des électrons émis par le canon; la solution du problème consiste à disposer un monochromateur entre la source d'électrons et l'échantillon : c'est ce qu'a réalisé Boersch (2) qui a pu atteindre une résolution de 0,017 eV.

Depuis les premières expériences de Rudberg par réflexion et de Ruthemann par transmission, les pertes d'énergie subies à travers la matière ont été abondamment étudiées; malheureusement le nombre et la valeur expérimentale des pertes trouvées changent souvent d'un auteur à l'autre. Les écarts observés tiennent essentiellement à la variété des montages expérimentaux, mais le problème le plus important reste actuellement l'interprétation théorique des pertes d'énergie dans la matière. En effet, si les différents phénomènes qui interviennent dans le processus des pertes d'énergie des électrons sont maintenant connus, la part qui revient à chacun d'entre eux dans la formation d'un spectre de pertes d'énergie est souvent controversée, car ils interviennent tous simultanément.

I. *INTERPRÉTATIONS THÉORIQUES DE L'ORIGINE DES PERTES CARACTÉRISTIQUES*

Les premières interprétations théoriques sur l'origine des pertes d'énergie caractéristiques sont fondées sur l'hypothèse des transitions interbandes électroniques. Un électron du faisceau incident provoque l'excitation ou l'ionisation d'un atome du réseau; il communique ainsi une partie de son énergie cinétique à un électron appartenant à une bande donnée du métal, celui-ci effectue alors une transition vers une bande permise. Kronig et Penny (16) ont émis l'hypothèse que les raies caractéristiques observées par Rubderg sur des spectres obtenus par réflexion, étaient dues à de telles transitions. En 1936 Rudberg et Slater (31) ont pu calculer, en se basant sur un modèle de structure des bandes, des pertes d'énergie caractéristiques en assez bon accord avec les valeurs obtenues expérimentalement par Rudberg. Plus récemment, Cauchois Y. (7), Watanabe H. (38), et Leder Mendlowitz et Marton (18) ont comparé les pertes d'énergie caractéristiques des électrons à la traversée des couches minces à la structure fine des spectres d'absorption X au-delà des discontinuités K ou L vers les grandes énergies. Ainsi, pour un certain nombre d'éléments, les valeurs des pertes caractéristiques sont en bon accord avec les valeurs des maxima d'absorption comptées à partir de la discontinuité K ou L (Cauchois pour sa part a comparé les valeurs de Ruthemann pour l'aluminium aux minima d'absorption du spectre d'absorption X au delà de la discontinuité K). De son côté Viatskin (37) a pu, en se fondant sur l'hypothèse des transitions interbandes, élaborer une théorie à partir de laquelle il a pu calculer des valeurs de pertes d'énergie en accord avec les résultats expérimentaux relatifs à un grand nombre d'éléments.

Cependant c'est la théorie collective qui considère l'interaction de l'électron incident et du gaz d'électrons libres constitué par les électrons de conduction (Bohm et Pines, 1953) qui a eu le plus de succès. Le gaz d'électrons libres ou plasma possède une fréquence d'oscillations propres $\omega_p = \left(\frac{4\pi ne^2}{m}\right)^{1/2}$, où n représente le nombre l'électrons libres par unité de volume, e et m sont respectivement la charge et la masse de l'électron exprimées en u.e.s. La valeur du quantum d'énergie $\hbar\omega_p$ nécessaire pour faire osciller le plasma est comprise entre 10 et 20 eV pour la plupart des métaux. Cette énergie est fournie par l'électron incident (dont l'énergie va de 50 à 100 keV en microscopie électronique) qui perd ainsi au cours de l'interaction une énergie $E = \hbar\omega_p$. Les pertes d'énergie subies par les électrons à la traversée de l'échantillon seront des multiples entiers de $\hbar\omega_p$. En fait l'expérience montre que si la

théorie est vérifiée pour un certain nombre d'éléments (Al, Mg ,Be), elle ne l'est pas du tout pour d'autres (Ag, Cu). Ce désaccord entre les résultats expérimentaux et les valeurs prévues par la théorie a été très discuté; actuellement le phénomène est mieux connu et a pu être expliqué par un traitement théorique basé sur l'étude des propriétés optiques et de la constante diélectrique $\varepsilon(\omega)$ de l'échantillon étudié : Marton (20), Frölich et Pelzer (9), Nozières et Pines (22), Wilson (41).

Si $\varepsilon(k, \omega)$ représente la constante diélectrique du milieu, la probabilité $P(k, \omega)$ pour qu'un électron incident transfère au plasma une énergie $\hbar\omega_p$, s'exprime en fonction de la partie imaginaire de

$$[\varepsilon(k, \omega)]^{-1} \quad \text{soit} \quad P(k, \omega) = -\frac{8\pi e^2}{\hbar k^2} I_m [\varepsilon(k, \omega)]^{-1}$$

Si l'on pose $\varepsilon(k, \omega) = \varepsilon_1(k, \omega) + i\varepsilon_2(k, \omega)$, la fonction $-I_m[\varepsilon(k, \omega]^{-1}$ varie comme $\dfrac{\varepsilon^2_1 + \varepsilon^2_2}{\varepsilon_2}$ qui représente ainsi la perte d'énergie par plasmon; d'autre part on démontre que ε_2 varie comme l'absorption optique et représente donc les transitions interbandes, puisque l'absorption d'un photon correspond au saut d'un électron d'une bande électronique à une autre plus éloignée du noyau. Si dans l'étude des constantes optiques on arrive à séparer les contributions des électrons libres d'une part et des électrons qui ont subi des transitions interbandes d'autre part (Ehrenreich, Philipp et Segal (8)), on peut connaître l'origine de telle ou telle perte (plasmon ou transitions interbandes). Ainsi dans le cas de l'aluminium, du magnésium et du béryllium où les électrons de conduction sont très peu liés, alors que les électrons des autres couches le sont beaucoup plus, les éventuelles transitions interbandes ne perturbent pas l'interaction électron-plasma, d'où les valeurs expérimentales en accord avec les valeurs théoriques données par $E = \hbar\omega_p$. Par contre dans le cas de l'argent les électrons de la couche d sont très faiblement liés, il y a de ce fait une forte interaction entre les transitions interbandes et les effets de plasma, d'où des valeurs expérimentales différentes des valeurs théoriques; ainsi dans le cas de l'argent la valeur expérimentale de la première perte par plasmon est de 3,5 eV alors que $\hbar\omega_p = 9$ eV. D'autre part, plusieurs expérimentateurs ont choisi l'argent pour vérifier la théorie de Ritchie (28), Stern et Ferrel (35) sur les plasmons de surface qui donnent des pertes d'énergie réduites ($\hbar\omega_p/\sqrt{2}$ ou $\hbar\omega_p/\sqrt{3}$ au lieu de $\hbar\omega_p$ suivant l'état de la surface). Kunz et Reather (17-27) pensent que la perte de 3,5 eV dans l'argent est due à un plasmon de surface, par contre Otto et Steinmann (23) arrivent à la conclusion que les deux plasmons de volume et de surface ont des énergies très voisines, le plasmon de volume devenant prédominant quand l'épaisseur augmente.

En tout état de cause, les deux types d'interactions individuelles ou collectives peuvent intervenir simultanément et donner lieu à des pertes d'énergie différentes; cependant Pines (25) a montré que les phénomènes collectifs sont nettement prépondérants pour les angles de diffusion faibles et que la probabilité d'excitation d'un plasmon d'énergie $\hbar\omega_p$ est supérieure à celle d'une transition interbande de même énergie.

II. *IMPORTANCE DES PERTES D'ÉNERGIE EN MICROSCOPIE ÉLECTRONIQUE*

Lorsqu'on observe un échantillon au microscope électronique, les électrons subissent à la traversée de l'objet des pertes d'énergie par l'un des différents processus que nous venons de décrire (électrons diffusés inélastiquement). Une grande partie de ces électrons est diffusée dans un angle relativement faible et passe par le diaphragme disposé au foyer image de l'objectif. Les électrons diffusés inélastiquement ont subi des pertes d'énergie dont la valeur est d'autant plus élevée que l'épaisseur traversée est plus grande, ils participent à la formation de l'image au même titre que les électrons qui n'ont subi aucune perte d'énergie à la traversée de l'objet (électrons diffusés élastiquement) et y introduisent des aberrations chromatiques qui abaissent la résolution de l'image en même temps qu'ils contribuent à une nette diminution du contraste; la perte en résolution est particulièrement importante sur les images en fond noir. On conçoit donc l'utilité d'un filtre passe-bande de vitesses permettant de former des images avec les électrons appartenant à une bande d'énergie choisie (4, 40).

Nous avons repris pour nos expériences, le microscope à filtrage magnétique des vitesses (50 à 100 keV), utilisant un système dispersif mis au point dans notre laboratoire (12, 13, 24), et que nous décrirons plus loin.

Nous avons tout d'abord exploré les possibilités ouvertes dans le domaine de l'analyse qualitative à haute résolution par le fait que les pertes d'énergie sont caractéristiques des constituants de la région traversée par les électrons. La formation d'une image avec les électrons qui ont subi une perte d'énergie caractéristique de l'un des constituants de l'objet révèle alors la distribution locale de ce constituant dans la région observée. Nous avons ensuite étudié la contribution des électrons diffusés inélastiquement à la formation du contraste des images. Cette étude nous a montré que les contrastes de diffraction que l'on observe en microscopie électronique classique sur les images de monocristaux apparaissent également sur les images filtrées quelle que soit l'importance de la perte d'énergie subie par les électrons que l'on a réservés pour la formation de l'image. Ils sont du même ordre pour

des pertes caractéristiques simples ou multiples, larges ou fines, ou même pour des pertes faisant partie du spectre continu. D'autre part l'étude du rayonnement diffusé autour de la tache centrale ou d'une tache de Bragg nous a montré que la diffusion inélastique par plasmons affecte d'une façon sensiblement égale les deux ondes de la théorie dynamique à deux faisceaux et que l'affaiblissement sélectif de l'une des deux ondes, qui conduit à la disparition des franges au-delà d'une certaine épaisseur, provient, pour une part notable, de la diffusion quasi-élastique par phonons.

Première partie

ANALYSE QUALITATIVE À HAUTE RÉSOLUTION PAR IMAGES ÉLECTRONIQUES FILTRÉES

I. *PRINCIPE DE LA MÉTHODE*

C'est Hillier (14) qui, en 1943, a repris les expériences que Ruthemann avait effectuées sur le collodion, pour étudier les pertes d'énergie lointaines subies par les électrons de grande énergie à la traversée de couches minces métalliques. Ces pertes d'énergie correspondent à l'ionisation d'un atome de l'objet par un électron du faisceau incident qui excite un électron d'une couche profonde L ou K. Une telle interaction met en jeu une énergie relativement élevée, égale au potentiel d'ionisation de la couche (1 550 eV pour la couche K de l'aluminium). Hillier a pu ainsi identifier dans les spectres de pertes d'énergie qu'il a obtenus, des « raies K » de l'aluminium (1 600 eV) et du béryllium (135 eV) ainsi que des « raies L et M » du fer (respectivement 730 et 57 eV). Ces pertes d'énergie sont discrètes et caractéristiques de l'objet traversé; de plus les potentiels d'ionisation des niveaux K pour les éléments légers et L et M pour les éléments lourds ont été déterminés avec précision grâce à l'étude aux rayons X. La présence dans un spectre de pertes d'énergie de raies correspondant à l'excitation d'un niveau quelconque (K, L ou M) d'un élément donné, indique la présence de cet élément dans l'échantillon, ce qui peut constituer une méthode d'analyse qualitative. Hillier et Baker (15) ont ainsi conçu un « microanalyseur électronique » où les électrons issus du canon et accélérés sous une tension de 15 à 50 keV sont focalisés, grâce à un système de deux lentilles magnétiques, en une sonde très fine sur l'objet à examiner; les électrons transmis sont repris par une troisième lentille; cette lentille les focalise à l'entrée du système dispersif magné-

tique qui en donne un spectre de pertes d'énergie. D'autre part, en excitant convenablement la troisième lentille, il est possible de convertir l'appareil en un « microscope à ombre » et de localiser ainsi avec précision la région analysée. Marton (19) a construit de son côté un appareil qui permet simultanément l'enregistrement du spectre de pertes d'énergie et l'observation de la région étudiée. Cependant, bien que très tentante a priori, cette méthode d'analyse a été très vite abandonnée. En effet les pertes caractéristiques relatives à l'excitation des couches électroniques profondes sont très peu intenses et exigent de ce fait un temps d'exposition souvent très long (40 minutes pour la raie du niveau K de l'aluminium chez Hillier) d'où une contamination importante de l'échantillon si des précautions extrêmes ne sont pas prises. De plus, le spectre de pertes d'énergie fourni correspond à l'ensemble des constituants qui composent la région analysée et ne permet pas de déterminer la distribution spatiale d'un élément dans cette région. Un tel résultat ne peut être obtenu que par l'utilisation d'un filtre passe-bande de vitesses qui associe les possibilités de la micro-analyse par pertes d'énergie à celles de la microscopie électronique; en effet, si l'on réserve pour la formation de l'image les électrons qui ont subi une perte d'énergie par plasmons (de valeur beaucoup plus faible mais d'intensité beaucoup plus grande que celles des pertes utilisées par Hillier et Baker), caractéristique de l'un des constituants de l'objet, l'image obtenue révèlera précisément la distribution de ce constituant dans l'ensemble de la région observée. Remarquons que la possibilité de limiter à une bande d'énergie donnée le spectre des électrons qui viennent concourir à la formation de l'image, jointe au caractère discret des pertes d'énergie subies par les électrons à la traversée d'une couche mince, permet la transposition dans le domaine électronique de la microscopie en couleur.

II. *DESCRIPTION DU SYSTÈME DISPERSIF*

Le filtre passe-bande utilisé dans notre laboratoire est essentiellement constitué par un microscope électronique classique associé à un système dispersif magnétique.

Le système dispersif, placé entre l'objectif et la lentille intermédiaire du microscope, est composé d'un prisme magnétique triangulaire à champ uniforme et d'un miroir électrostatique (Figure 1). Un faisceau électronique monochromatique subit dans le prisme une première déflexion à 90°; il est ensuite réfléchi par le miroir qui le renvoie vers le prisme où il subit une seconde déflexion à 90°, symétrique de la pre-

mière, et qui ramène son axe dans le prolongement de celui du faisceau initial.

L'étude théorique des trajectoires à l'approximation de Gauss montre que le premier demi-prisme possède deux couples de points stigmatiques, l'un réel (A_1, A_2), l'autre virtuel (I_1, I_2); il en est de même pour le second demi-prisme dont les points stigmatiques sont symétriques de ceux du premier par rapport à l'axe du miroir.

Le sommet et le centre du miroir sont placés aux points stigmatiques images du premier demi-prisme, le sommet au point image réel A_2, le centre au point image virtuel I_2.

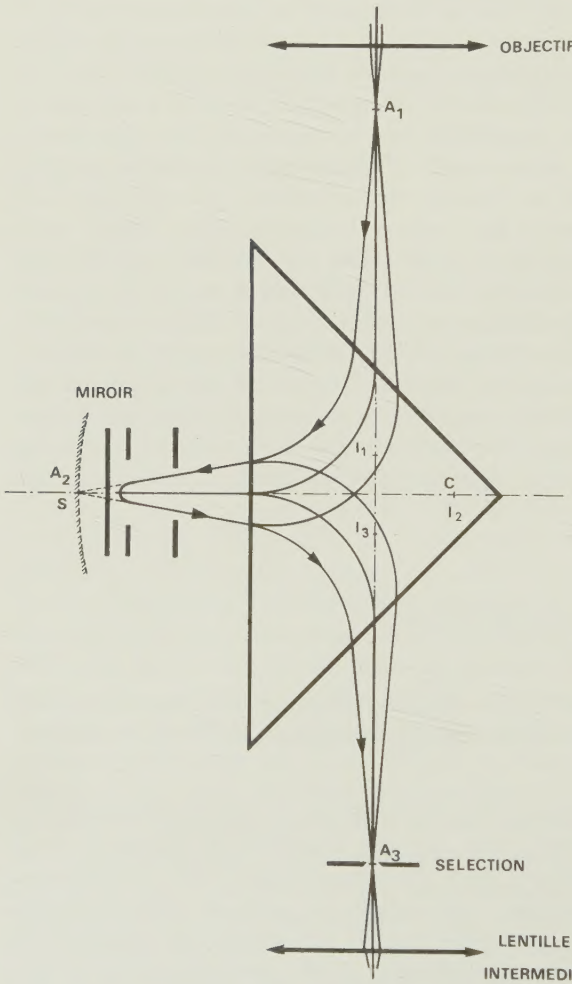


FIGURE 1. Schéma de principe.

D'autre part, l'étude des propriétés dispersives du système complet montre que les trajectoires moyennes d'électrons d'énergies différentes semblent toutes issues d'un même point : il existe donc à ce niveau un plan achromatique. Ce plan se trouve situé au niveau du point stigmatique virtuel I_3 du prisme. Disposé convenablement à la sortie de l'objectif d'un microscope électronique (« cross-over » en A_1, image en I_1), un tel système n'introduit d'astigmatisme ni sur le « cross-over » ni sur l'image donnés par cet objectif. D'autre part, l'image qui se forme à la sortie du prisme au niveau de I_3 est non seulement stigmatique, mais de plus achromatique, puisque tous les électrons issus d'un même point objet, quelles que soient leurs directions et leurs énergies, semblent provenir d'un même point image. L'action du système dispersif aura donc simplement consisté à déplacer le « cross-over » de sortie de l'objectif de A_1 en A_3 et l'image de I_1 en I_3. Mais dans le cas où le faisceau traverse une préparation il se forme dans le plan situé au niveau de A_3 un spectre de pertes d'énergie. Si l'on place alors à ce niveau une fente réglable en position et en largeur (constituée par deux lames situées dans le même plan et qui se déplacent indépendamment l'une de l'autre), on peut isoler pour la formation de l'image finale les électrons qui ont subi une perte d'énergie comprise dans une bande choisie; l'appareil fonctionne alors en filtre passe-bande de vitesses. Il permet d'utiliser pour la formation d'une image, soit les électrons qui n'ont pas subi de pertes d'énergie (image filtrée sans pertes), soit ceux qui ont subi une perte d'énergie caractéristique de la région de l'échantillon qu'ils ont traversée (image filtrée avec la perte $E \pm \Delta E$ eV). Signalons enfin que le système dispersif permet l'obtention, sur l'écran d'observation, d'une image sur laquelle vient se surimprimer le spectre de pertes d'énergie correspondant, si bien qu'à chaque énergie correspond une région différente de l'objet. En effet lorsque l'ouverture du faisceau admis à l'entrée de l'aimant est grande, le calcul des aberrations d'ouverture (13, 34) montre, qu'à un objet en forme de contour rectangulaire situé au niveau du « cross-over » d'entrée A_1, le système dispersif fait correspondre, au niveau du « cross-over » A_3, un contour formé de deux arcs de paraboles parcourus deux fois, ce qui veut dire que l'image à ce niveau est repliée sur elle-même; cette figure d'aberration s'ouvre évidemment à nouveau pour donner une image agrandie sur l'écran d'observation. Si l'on coupe la figure d'aberration par les lames de sélection qui délimitent une fente placée au niveau de A_3, on obtient sur l'écran deux bandes lumineuses symétriques par rapport au centre de l'image. Le raisonnement précédent n'est évidemment valable que pour un faisceau d'électrons monochromatique.

Faisons maintenant intervenir les pertes d'énergie à la traversée de l'objet et supposons que le faisceau admis à l'entrée du système dispersif

a une grande ouverture; nous aurons alors au niveau de A_3 non plus une tache d'aberration, mais plusieurs taches qui se recouvrent en partie et qui correspondent aux différentes pertes d'énergie caractéristiques de l'objet étudié (Figure 2). Remarquons cependant qu'il n'y aura

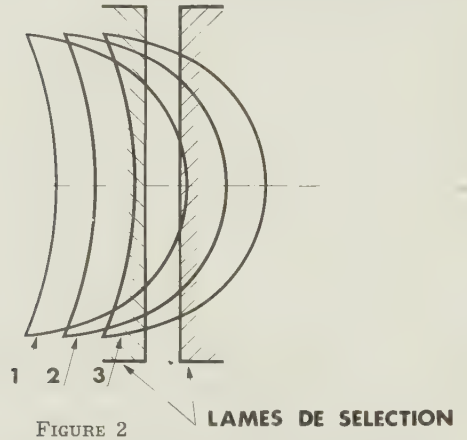


Figure 2

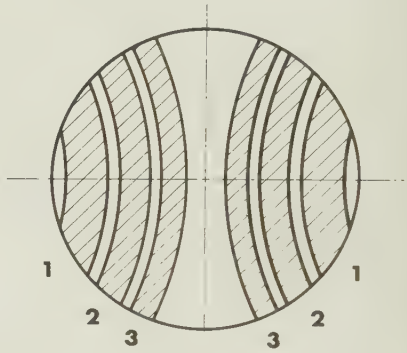


Figure 3

Figure 2. Figures d'aberration au niveau du « cross-over » de sortie du prisme. 1. Sans perte d'énergie; 2. 1re perte; 3. 2e perte.
Figure 3. Spectre « surimprimé » sur l'image finale.

qu'une seule image sur l'écran d'observation puisque le système dispersif possède un plan achromatique et que la lentille intermédiaire est excitée de façon à projeter l'image virtuelle située en I_3 au niveau du plan achromatique. Si, utilisant une grande ouverture et un très faible grandissement du projectif, nous avançons les lames de sélection de façon à couper simultanément plusieurs taches d'aberrations, nous obtiendrons sur l'écran un spectre surimprimé sur l'image (Figure 3), de telle sorte qu'à chaque perte d'énergie correspond une région différente de l'objet.

Nous pouvons ainsi obtenir en surimpression sur l'image un spectre de pertes d'énergie qui s'étend sur une bande pouvant atteindre 100 eV; de plus, ce spectre peut être déplacé sur l'image, celle-ci demeurant fixe, soit par déplacement de la fente de sélection, soit par modification de l'excitation du prisme magnétique.

Lorsque le microscope fonctionne en filtre passe-bande de vitesses, il offre la possibilité de former des images avec les électrons qui ont subi une perte d'énergie caractéristique de la région traversée; il permet dans ce cas d'identifier les différents constituants d'une préparation, ou d'en établir la carte de distribution (5, 6).

Les difficultés rencontrées dans cette nouvelle méthode d'analyse sont évidemment d'autant plus grandes que les régions à analyser sont de dimensions plus petites.

III. *DOMAINES D'APPLICATION DE LA MÉTHODE*

1. Objets superposés ou juxtaposés

Le cas le plus simple est celui où les composés à analyser, de dimensions relativement grandes (supérieures à quelques dixièmes de micron), sont déposés les uns sur les autres; c'est par exemple le cas du noir de carbone déposé sur une couche mince d'aluminium évaporé. La figure *a* de la Planche I reproduit l'image filtrée sans pertes. Le noir de carbone y apparaît opaque comme en microscopie classique, alors que l'aluminium est lumineux; la figure *b* de la même planche reproduit l'image de la même région filtrée cette fois avec une perte caractéristique du noir de carbone ($E = 23 \pm 1$ eV); on constate que c'est le noir de carbone qui est devenu lumineux alors que l'aluminium l'est beaucoup moins que sur la figure *a*.

On peut déjà remarquer d'après cet exemple que lorsque l'on forme une image avec les électrons qui ont subi une perte caractéristique de l'un des composants de l'échantillon, il n'est pas possible en général d'éteindre complètement les régions où prédominent les autres constituants; ce résultat est dû à l'existence dans les spectres de pertes d'énergie d'un « fond continu » auquel contribuent indifféremment, mais cependant de façon inégale, toutes les parties de la région observée.

Un second cas qui ne présente pas de difficultés est celui de l'identification de constituants de dimensions relativement grandes juxtaposés les uns aux autres.

A titre d'exemple, une couche mince d'aluminium évaporé sous vide a été partiellement oxydée. La figure *a* de la Planche II reproduit l'image filtrée sans pertes, les figures *b* et *c* (Pl. II) reproduisent les images filtrées respectivement avec une perte caractéristique de l'aluminium ($E = 14{,}6 \pm 1{,}5$ eV) et une perte caractéristique de l'alumine ($E = 21{,}4 \pm 1{,}5$ eV). Sur l'image filtrée sans perte (Figure *a*) apparaissent deux types de régions, les unes lumineuses, les autres plus ou moins opaques; par contre les images filtrées avec pertes montrent que les régions opaques deviennent lumineuses sur « l'image aluminium » (Figure *b*) et restent opaques sur « l'image alumine » (Figure *c*). Ces régions sont donc constituées par de l'aluminium; les autres régions constituées d'alumine sont opaques sur l'image aluminium et deviennent brillantes sur l'image alumine. La méthode permet dans ce cas d'établir avec une grande précision (sur la figure *b* de la Planche II, on distingue des grains d'aluminium dont les dimensions n'excèdent pas 100 Å) la carte de distribution locale de l'aluminium dans l'échantillon.

Les deux cas que nous venons d'étudier ne présentent pas de grandes difficultés, puisque les régions à analyser y sont en général de grandes dimensions (tout au moins à l'échelle de la microscopie électronique) et que les électrons qui ont servi à former les images ont subi des pertes bien connues, qui peuvent sans ambiguïté être attribuées à des phases bien définies.

Cependant le problème se complique lorsque les régions à analyser sont de faibles dimensions, c'est-à-dire inférieures au dixième de micron; c'est le cas par exemple de petits grains que nous avons observés sur des échantillons de silicium.

Des pastilles de silicium ont été amincies par bombardement ionique, en utilisant des ions de 3,5 keV d'énergie sous une densité de 10 $\mu A/mm^2$. L'examen de ces échantillons au microscope électronique classique montre la présence, en certaines régions, de grains de quelques centaines d'angströms, de luminosité voisine de celle de la matrice, mais cependant d'aspect différent. La figure *c* de la Planche I reproduit l'image filtrée sans pertes d'un échantillon de ce type; elle est semblable à celles obtenues en microscopie électronique classique, mais sur la figure *d* (Pl. I) qui reproduit l'image de la même région formée avec des électrons qui ont subi une perte d'énergie comprise entre la première (16 eV) et la seconde (32 eV) perte caractéristique du silicium, les grains apparaissent, cette fois, brillants alors que la matrice de silicium est devenue moins lumineuse; ce résultat prouve que ces grains ont une composition différente de celle de la matrice de silicium. Il s'agit probablement d'un oxyde de silicium.

Nous avons essayé d'étendre cette méthode à ce domaine important de la métallurgie que constitue l'étude des alliages et notamment l'identification de phases se présentant sous forme de précipités de très petites dimensions, de l'ordre du centième de micron.

2. Cas des alliages

La méthode que nous avons étudiée utilise les pertes d'énergie subies par les électrons à la traversée de l'objet; il est donc utile de rappeler les résultats connus concernant les pertes d'énergie dans les alliages.

a. *Pertes d'énergie dans les alliages*

Si nous considérons un alliage binaire, les différents processus de pertes d'énergie interviennent, soit simultanément, soit séparément; pour une perte d'énergie par excitation de plasmon, la densité électronique n dans l'alliage n'a plus la même valeur que dans les deux constituants, il faut donc s'attendre à trouver, à partir d'une certaine concentration, des pertes d'énergie par plasmon dont les valeurs sont différentes de

celles des deux constituants. De même pour une perte d'énergie du type « transitions interbandes d'électrons », lorsque la concentration du constituant A augmente dans l'alliage A-B, l'intensité des pertes caractéristiques de A doit en principe croître tandis que l'intensité des pertes caractéristiques de B doit décroître, avec la possibilité d'une légère variation de la valeur des pertes due à un éventuel changement dans la structure des bandes.

Plusieurs expérimentateurs se sont attachés à vérifier ces prévisions théoriques : ainsi Powell (26) a étudié deux alliages, l'aluminium-cuivre et l'aluminium-magnésium; il a obtenu des valeurs de pertes d'énergie comprises entre les valeurs des pertes caractéristiques des éléments constituants, et en a conclu que pour un alliage binaire homogène les valeurs des pertes varient, en fonction de la concentration, entre les deux valeurs extrêmes. Cependant la méthode employée ne permettait pas d'établir une relation entre la concentration d'un des constituants dans l'alliage et les valeurs des pertes d'énergie. En effet Powel évaporait directement les constituants de ses alliages dans l'analyseur de vitesses et son montage ne lui permettait pas de déterminer les concentrations et de vérifier l'homogénéité de l'alliage.

Fujimoto et Sueoka (10) ont étudié en détail le cas de l'alliage aluminium-argent dont l'un des composants, l'aluminium, possède une perte par plasmon bien connue (15 eV) qui correspond à la valeur théorique, et ne peut pas de ce fait être considérée comme étant affectée par les transitions interbandes, tandis que l'argent possède une perte par plasmon notablement affectée par de telles transitions. Ils ont trouvé que, dans ce cas, la première perte par plasmon de l'alliage décroît de façon continue de 3,5 à 3,3 eV quand la concentration en aluminium augmente; dès que celle-ci atteint 70 % la valeur de la perte passe brusquement à 14,8 eV. Ces observations ont été faites sur des films minces obtenus par évaporation simultanée et recuits vers 500 °C pendant plusieurs heures. Ces deux exemples montrent que la détermination des pertes d'énergie caractéristiques subies par les électrons à la traversée d'un alliage, ne présente pas de difficultés majeures; la composition exacte de l'alliage étant connue (par la connaissance du poids des éléments évaporés par exemple), il suffit de s'assurer que les deux métaux constituants forment une solution solide homogène, grâce à un recuit adéquat, avant d'en étudier le spectre des pertes d'énergie à l'aide de l'analyseur de vitesses; l'observation du même spectre de pertes d'énergie sur toute l'étendue de l'échantillon étant un test d'homogénéité, tout au moins à grande échelle.

Par contre, le problème se complique lorsqu'il s'agit de déterminer les pertes d'énergie caractéristiques de précipités de très petites dimensions, noyés dans la matrice de l'alliage. Il est en effet fort peu probable

que les pertes d'énergie subies par les électrons à la traversée de petits précipités soient identiques à celles que subissent les électrons à la traversée d'un échantillon massif de même composition, observé séparément; dans le processus de pertes d'énergie interviennent en effet des facteurs liés au volume de l'échantillon, à la nature de sa surface et à sa forme géométrique. D'autre part, les pertes d'énergie caractéristiques de précipités de l'ordre du centième de micron, contenus dans une matrice, sont très peu intenses et souvent noyées dans le fond continu du spectre de cette matrice. L'intensité relative, par rapport au fond continu, de la première perte caractéristique d'un précipité allongé, sera fonction de l'épaisseur de la matrice dans laquelle est situé ce précipité, de l'épaisseur de celui-ci ainsi que de sa direction par rapport au faisceau électronique. Ainsi un précipité allongé, perpendiculaire aux faces de la lame observée et émergeant des deux côtés de celle-ci, sera traversé par le faisceau sur toute sa longueur et les électrons ont une forte probabilité de subir des pertes d'énergie multiples qui contribueront à une région éloignée du spectre et de ce fait difficilement observable. Cependant le cas le plus favorable est celui de minces plaquettes parallèles à la surface de l'objet; les électrons qui les traversent auront alors une faible probabilité de subir des pertes d'énergie successives; la première perte caractéristique des plaquettes sera assez intense pour émerger du fond continu du spectre, pour peu que l'épaisseur de la matrice soit très faible des deux côtés des plaquettes. En fait les deux cas considérés précédemment sont des cas limites, et il doit exister une épaisseur optimale de la matrice, à partir de laquelle — pour une épaisseur et une direction données des précipités — les pertes d'énergie caractéristiques des précipités deviennent discernables.

Cependant, même quand ces conditions sont satisfaites, les pertes d'énergie caractéristiques subies par les électrons à la traversée des précipités peuvent être assez peu intenses pour être mesurées directement à partir d'un spectre de pertes d'énergie. C'est pourquoi nous avons mis à profit les propriétés de notre système dispersif qui permet l'obtention d'un spectre de pertes d'énergie surimprimé sur l'image, pour déterminer les valeurs de telles pertes.

b. *Exemples d'application*

Nous avons ainsi pu étudier deux alliages : un alliage aluminium-cuivre à 4 % et un alliage aluminium-zinc 7,6 % - magnésium 2,6 %.

— Aluminium-cuivre 4 %.

Des feuilles minces d'aluminium-cuivre à 4 % ont été traitées de façon à contenir, soit des plaquettes et de très petits précipités de la phase

Al_2Cu θ″ (recuit de 24 heures à 175 °C), soit uniquement des plaquettes de grandes dimensions de la phase Al_2Cu θ′ (recuit de 24 heures à 250 °C). Ces feuilles ont été ensuite polies électrolytiquement par la méthode de la fenêtre dans un bain composé d'alcool méthylique et d'acide perchlorique à 20 %, refroidi aux environs de — 20 °C. Nous avons d'abord vérifié que les pertes caractéristiques de la matrice de l'alliage n'étaient pas discernables de celles de l'aluminium pur; c'était un résultat prévisible étant donné la faible teneur en cuivre de la solution solide.

Les échantillons amincis ont été observés en formant successivement les images produites par les électrons qui avaient subi les différentes pertes caractéristiques à la traversée de l'objet; nous avons constaté que tout se passe comme si les plaquettes et les précipités de la phase θ″ avaient les mêmes pertes caractéristiques que la matrice de l'alliage. Nous pouvons constater (Pl. II, fig. *d*), sur un spectre surimprimé où l'image en champ noir est due à la réflexion correspondant aux plaquettes Al_2Cu, que ces plaquettes présentent une luminosité maximale uniquement au niveau des pertes caractéristiques de la matrice. Si les plaquettes possédaient une perte caractéristique de valeur différente de celles des pertes caractéristiques de la matrice, celle-ci viendrait nécessairement s'insérer entre deux pertes du spectre de la matrice, et le contraste des plaquettes subirait brusquement une modification importante, ce qui ne s'observe pas sur nos clichés. Il n'est donc pas possible, dans ce cas particulier, d'identifier ces plaquettes dans un alliage aluminium-cuivre à 4 %.

— Aluminium-Zinc-Magnésium.

Nous avons étudié les précipités contenus dans un alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 % recuit 72 heures à 175 °C et aminci électrolytiquement par la méthode de la fenêtre. Un spectre de pertes d'énergie surimprimé sur l'image (Pl. III, fig. *d*), nous a permis de constater que ces précipités possédaient une perte caractéristique de valeur différente de celles de la matrice, et qui est nettement visible dans la région comprise entre la première et la deuxième perte de la matrice, région où les précipités deviennent brillants alors qu'ils sont opaques lorsque l'image est formée avec l'une des pertes caractéristiques de la matrice. Dans ce cas nous pouvons donc prévoir qu'il sera possible d'identifier ces précipités à l'aide d'images filtrées. La figure *a* de la Planche III reproduit une image filtrée sans pertes; on y observe de petits précipités transparents. Les figures *b* de la Planche III et *a* de la Planche IV reproduisent les images formées avec les électrons qui ont subi la première perte caractéristique de la matrice (voisine de 15 eV); les précipités y apparaissent en sombre sur fond clair, par contre ils apparaissent en lumineux sur fond sombre dans le cas des figures *c* de la Planche III et *b* de la Planche IV qui

représentent les images formées avec des électrons qui ont subi une perte située dans une bande d'énergie comprise entre 20 et 25 eV. En fait l'étude aux rayons X de cet alliage montre que ces précipités, qui possèdent une perte d'énergie caractéristique dont la valeur est différente de celles des pertes de la matrice, correspondent à la phase η-$MgZn_2$ (11).

IV. Avantages et inconvénients de la méthode

Le système dispersif utilisé n'introduisant sur les images ni astigmatisme, ni chromatisme, ni aberrations géométriques importantes, la résolution obtenue dans ces conditions est comparable à celle que l'on obtient à l'aide d'un microscope électronique classique; elle lui est même supérieure quand il s'agit d'images filtrées en champ sombre. Le dernier exemple nous a montré qu'il était possible d'identifier des précipités de l'ordre du centième de micron. En fait, la finesse de cette méthode ne semble pas être limitée par la résolution du microscope utilisé, mais plutôt par le caractère des différents phénomènes qui conduisent aux processus de pertes d'énergie des électrons dans la matière. Sueoka (36) a montré par exemple, dans le cas d'un alliage aluminium-béryllium, qu'il fallait que la dimension des cristallites atteigne 50 à 60 Å pour qu'ils participent aux pertes d'énergie par plasmon.

Cependant les résultats que nous avons obtenus (Pl. II, fig. b) montrent que, dans certains cas, on peut atteindre dans de telles analyses qualitatives, une résolution de quelques dizaines d'angströms.

Une telle méthode d'analyse qualitative ultra-fine peut constituer un complément précieux au micro-analyseur à sonde électronique et au micro-analyseur à émission ionique secondaire (34). D'autre part, le système dispersif utilisé peut très bien s'adapter au microscope électronique par réflexion dont l'utilisation a été limitée jusqu'à présent par l'importance des aberrations chromatiques. Le filtre passe-bande de vitesses permettrait, dans ce cas, un gain en résolution considérable.

Signalons cependant que la méthode présente un certain nombre de difficultés d'utilisation qui tiennent essentiellement aux propriétés des spectres de pertes d'énergie : il est fréquent que des pertes caractéristiques recouvrent une bande du spectre d'énergie de plusieurs électrons-volts; des pertes de ce type, correspondant à des composés différents, peuvent alors se chevaucher, et être par là-même difficiles à séparer par les lames de sélection. Par ailleurs, l'existence d'un fond continu plus ou moins intense et qui se superpose au spectre discret se traduit par un affaiblissement du contraste plus ou moins important sur les images filtrées avec pertes; en effet, dans ce cas, la bande utilisée pour la formation de l'image comprend, en plus de la perte

discrète, une partie de ce fond continu qui n'est pas caractéristique d'un constituant déterminé de la région à analyser.

La principale difficulté de la méthode vient d'ailleurs du fait que l'on possède peu de renseignements précis sur les valeurs des pertes d'énergie des électrons dans la matière; les résultats expérimentaux sont souvent peu concordants, d'autant plus que beaucoup de phénomènes intervenant dans les processus de pertes d'énergie restent encore mal expliqués. Nous sommes bien loin de disposer pour les pertes d'énergie des électrons à travers la matière, d'un tableau comparable à celui dont on dispose pour les longueurs d'onde d'émission des rayons X. Par contre, si nous considérons les pertes d'énergie éloignées, provenant de l'interaction d'un électron du faisceau incident et d'un électron d'une couche profonde (K, L ou M) d'un atome de l'échantillon, cette interaction entraîne l'ionisation de l'atome en question. Dans ce cas, la valeur de la perte d'énergie est égale à celle du potentiel d'ionisation bien connu des spectroscopistes et permet en principe d'identifier sans ambiguïté l'atome ionisé.

Nous avons utilisé notre appareil essentiellement comme filtre passe-bande de vitesses; notons que lorsqu'il fonctionne en simple analyseur de vitesses, il permet d'atteindre une résolution de 1 eV sur 100 keV; l'étude des spectres de pertes d'énergie (détermination de la valeur des pertes, de leur variation avec l'angle de diffusion, etc...) ne présente donc pas de grandes difficultés. Ainsi, nous avons souvent observé des pertes lointaines, aux environs de 100 eV, correspondant à l'excitation des électrons L des atomes d'une lame mince d'aluminium évaporé; malheureusement ces pertes sont très peu intenses et il semble qu'elles ne soient visibles que pour une épaisseur optimale, au-delà de laquelle elles sont noyées dans le fond continu du spectre.

L'étude des pertes lointaines apporterait beaucoup d'informations sur les éléments observés, car elles sont caractéristiques du degré de liaison des différentes couches électroniques entourant le noyau atomique, et ne dérivent pas d'un phénomène collectif comme celui des pertes d'énergie par excitation de plasma que nous avons utilisées dans notre méthode d'analyse. Il serait du plus grand intérêt, comme l'a signalé H. Watanabe (39), de revenir à l'idée d'Hillier et d'utiliser les pertes lointaines pour mettre au point une méthode de microanalyse; mais il conviendrait, au lieu de s'en tenir à une simple étude du spectre de pertes d'énergie, d'essayer de former des images avec les électrons ayant subi de telles pertes à la traversée de l'objet.

RÉSUMÉ

L'utilisation, pour la formation des images en microscopie électronique, des seuls électrons qui ont subi une perte d'énergie discrète et caractéristique à la traversée d'un corps composé, conduit à une image qui révèle sélectivement la distribution locale de l'un des constituants dans la région observée de l'échantillon.

Cette nouvelle méthode de microanalyse qualitative permet par exemple l'identification des phases de dimensions très petites, de l'ordre du centième de micron. Les possibilités de cette méthode d'analyse sont liées à la fois aux caractéristiques du système dispersif et à celles des spectres d'énergie donnés par les divers composants de l'échantillon que l'on désire analyser.

SUMMARY

Utilising, for the formation of electron microscope images, only those electrons that have suffered a discrete and characteristic energy loss reveals the local distribution of a given constituent in the observed region.

This new method of qualitative microanalysis allows the identification of phases of very small dimensions, of the order of 100 Å. The possibilities of this technique are related both to the dispersive system used and to the characteristics of the energy-loss spectrum of the constituents being analysed.

BIBLIOGRAPHIE

1. Becker J.A., 1924. Velocity Distribution of Secondary Electrons. *Phys. Rev.*, **23**, 664.
2. Boersch H., Geiger J. et Stickel W., 1964. Das Auflösungsvermögen des elektrostatisch-magnetischen Energieanalysators für schnelle Elektronen. *Z. Phys.*, **180**, 415-424.
3. Bohm D. et Pines D., 1953. A Collective Description of Electron Interactions : Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas. *Phys. Rev.*, **92**, 609-625.
4. Castaing R. et Henry L., 1962. Filtrage magnétique des vitesses en microscopie électronique. *C.R. Acad. Sc.*, **255**, 76-78.
5. Castaing R., El Hili A. et Henry L., 1965. Analyse qualitative par images électroniques filtrées. *IV^e Congrès International sur l'Optique des R. X et la Microanalyse*, Orsay. Herman éd., Paris (sous presse).

6. Castaing R., El Hili A. et Henry L., 1965. Microanalyse par images électroniques filtrées. *C.R. Acad. Sc.*, **261**, 3399-3402.

7. Cauchois Y., 1952. Etude comparée du spectre K d'absorption de l'aluminium métallique. *Acta Cris.*, **5**, 351-356.

8. Ehrenreich H., Philip H.R. et Segall B., 1963. Optical Properties of Aluminium. *Phys. Rev.*, **132**, 1918-1928.

9. Frolich H. et Pelzer H., 1955. Plasma Oscillations and Energy Loss of Charged Particles in Solids. *Proc. Phys. Soc.*, **A68**, 525-529.

10. Fujimoto F. et Sueoka O., 1964. Plasma Oscillation of Electrons in Alloy I. Ag-Al Alloy. *J. Phys. Soc. Japan*, **19**, 2069-2077.

11. Genty B., Graf R. et Lenoir G., 1958. Etude au microscope électronique de la précipitation dans l'alliage Al-Zn 7 % - Mg 3 % (AZ7G3). *C.R. Acad. Sc.*, **247**, 2126-2139.

12. Hennequin J.F., 1960. Etude d'un dispositif de filtrage magnétique des images électroniques. Diplome d'Etudes Supérieures, Paris.

13. Henry L., 1964. Filtrage magnétique des vitesses en microscopie électronique. Thèse de Doctorat, Orsay. *Bul. Soc. Franç. Minéral. Cris.*, **88**, 172-183.

14. Hillier J., 1943. On Microanalysis by Electrons. *Phys. Rev.*, **64**, 318-319.

15. Hillier J. et Baker R.F., 1944. Microanalysis by means of Electrons. *J. App. Phys.*, **15**, 663-675.

16. Kronig R.L. et Penny W.G., 1931. Quantum Mechanics of Electrons in Cristal Lattices. *Proc. Roy. Soc.*, **130**, 499-513.

17. Kunz C., 1964. Messung der unsymmetrischen Winkelverteilung der characteristischen Oberflächenverluste an Al (6,3 eV) und Ag (3,6 eV). *Z. Phys.*, **180**, 127-132.

18. Lewis B. Leder, Mendolowitz H. et Marton L., 1956. Comparison of the Characteristic Energy Loss of Electrons with the Fine Structure of X-Ray Absorption Spectra. *Phys. Rev.*, **101**, 1460-1467.

19. Marton L., 1944. On Electron Microspectroscopy. *Phys. Rev.*, **66**, 159.

20. Marton L., Lewis B. Leder et Mendlowitz H., 1955. Energy Losses in Solids. *Advances in Electronics*, Academic Press, New-York, **VII**, 183-238.

21. Mollenstedt G., 1949. Die elektrostatische Linse als hochauflösender Geschwindigkeitsanalysator. *Optik*, **5**, 499-517.

22. Nozières P. et Pines D., 1958. A Dielectric Formulation of the Many-body Problem : Application to the Free Electron Gas. *Nuovo Cimento*, **9**, 470-490.

23. Otto A. et Steinmann W., 1962. Schichtdickenabhängigkeit des niedrigsten characteristischen Energieverlustes von 25 keV-Elektronen bei Durchstrahlung dünner Ag-Schichten. *Phys. Stat. Sol.*, **2,** K 187.

24. Paras N., 1961. Etude d'un dispositif de filtrage des images électroniques. Diplôme d'Etudes Supérieures, Orsay.

25. Pines D., 1956. Collective Energy Losses in Solids. *Rev. Mod. Pyhs.*, **28,** 184-198.

26. Powell C.J., 1960. The Characteristic Electron Energy Loss Spectra of Aluminium-Magnesium and Aluminium-Copper. *Aus. J. Phys.*, **13,** 145-152.

27. Raether H., 1965. Solid State Excitations by Electrons. *Springer Tracts in Modern Physics,* **38,** 84-157.

28. Ritchie R.H., 1957. Plasma Losses by Fast Electrons in Thin Films. *Phys. Rev.*, **106,** 874-881.

29. Rudberg E., 1930. Characteristic Energy Losses of Electrons Scattered from Incandescent Solids. *Proc. Roy. Soc.*, **A 127,** 111-140.

30. Rudberg E., 1936. Inelastic Scattering of Electrons from Solids. *Phys. Rev.*, **50,** 138-150.

31. Rudberg E. et Slater J.C., 1936. Theory of Inelastic Scattering of Electrons from Solids. *Phys., Rev.*, **50,** 150-158.

32. Ruthemann G., 1941. Diskrete Energieverluste schneller Elektronen in Festkörpern. *Naturwiss.*, **29,** 648.

33. Ruthemann G., 1948. Elektronenbremsung an Röntgenniveaus. *Ann. Phys.*, **2,** 135-146.

34. Slodzian G., 1964. Étude d'une méthode d'analyse locale chimique et isotopique utilisant l'émission ionique secondaire. Thèse de Doctorat, Orsay. *Ann. Phys.*, **9,** 591-648.

35. Stern E.A. et Ferrel R.A., 1960. Surface Plasma Oscillations of a Degenerate Electron Gas. *Phys. Rev.*, **120,** 130-136.

36. Sueoka O., 1965. Plasma Oscillation of Electrons in Alloy III. Al-Be, Al-Ge and Al-Sn Eutectoids. *J. Phys. Soc. Japan,* **20,** 2212-2225.

37. Viatskin A., 1958. The Theory of Inelastic Scattering of Electrons in Metals. *Soviet Phys., Tech. Phys.*, **3,** 2252-2264.

38. Watanabe H., 1954. On the Velocity Analysis of Electrons Scattered by Thin Foils. *J. Phys. Soc. Japan,* **9,** 920-928.

39. Watanabe H., 1965. Microanalysis by Electron Energy Analysis. *IV^e Congrès International sur l'Optique des R. X et la Microanalyse,* Orsay. Herman, éd., Paris (sous presse).

40. Watanabe H. et Uyeda R., 1962. Energy Selecting Electron Microscope. *J. Phys. Soc. Japan,* **17,** 569-570.

41. Wilson C.B., 1960. A Phenomenological Theory of Characteristic Energy Losses of Fast Electrons in Metals. *Proc. Phys. Soc.,* **76,** 481-488.

Manuscrit reçu le 20 septembre 1966.

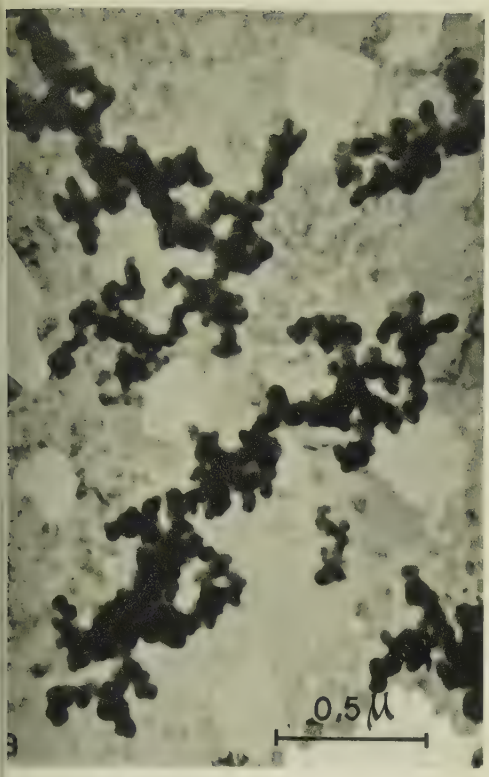
Planche I

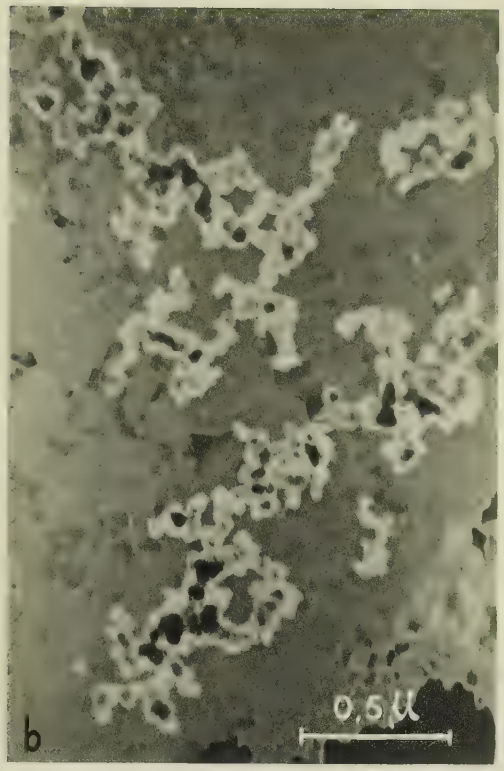
Fig. a. — Carbone sur aluminium évaporé;
image filtrée sans pertes; $V = 70\,kV$; $\times$ 40 000.

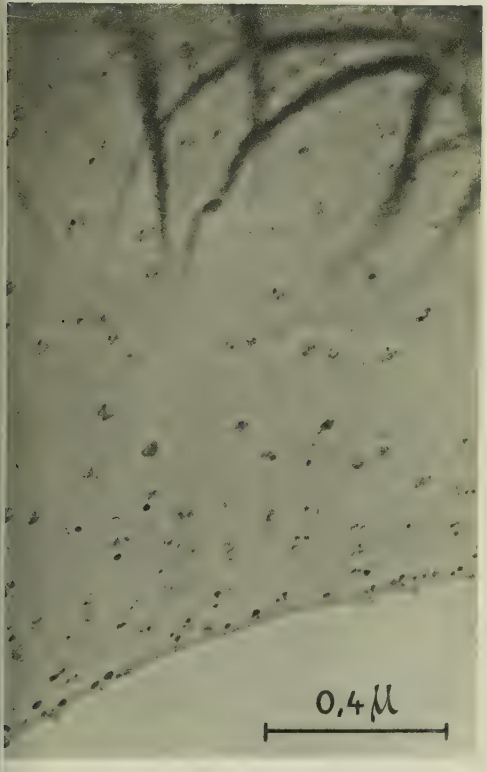
Fig. b. — Carbone sur aluminium évaporé;
image filtrée $\Delta E = 23 \pm 0{,}75\,eV$; $V = 70\,kV$; $\times$ 40 000.

Fig. c. — Silicium aminci par bombardement ionique;
image filtrée sans pertes; $V = 70\,kV$; $\times$ 60 000.

Fig. d. — Silicium aminci par bombardement ionique :
image filtrée $16\,eV < \Delta E < 32\,eV$; $V = 70\,kV$; $\times$ 60 000.


0,5 μ


b
0,5 μ


0,4 μ

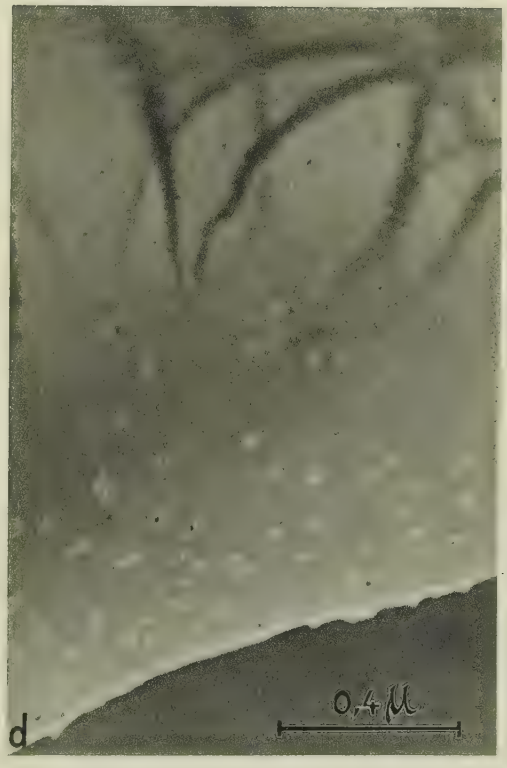

d
0,4 μ

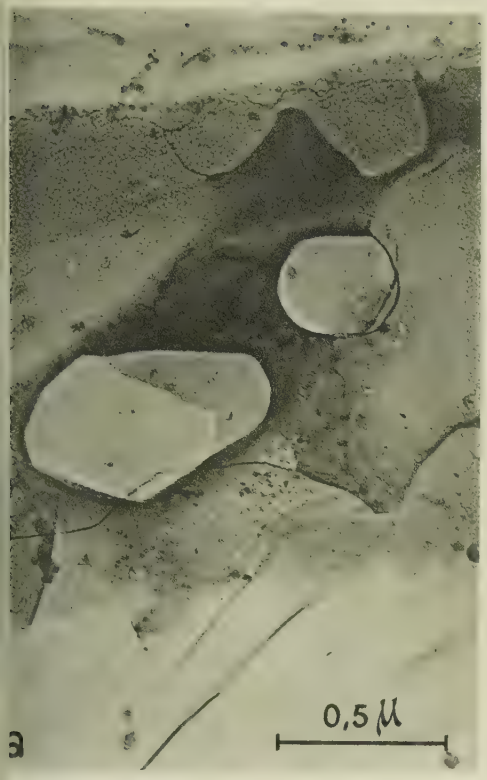
Planche II

Fig. a. — Couche mince d'aluminium évaporé, partiellement oxydée; image filtrée sans pertes; V = 70 kV; × 45 000.

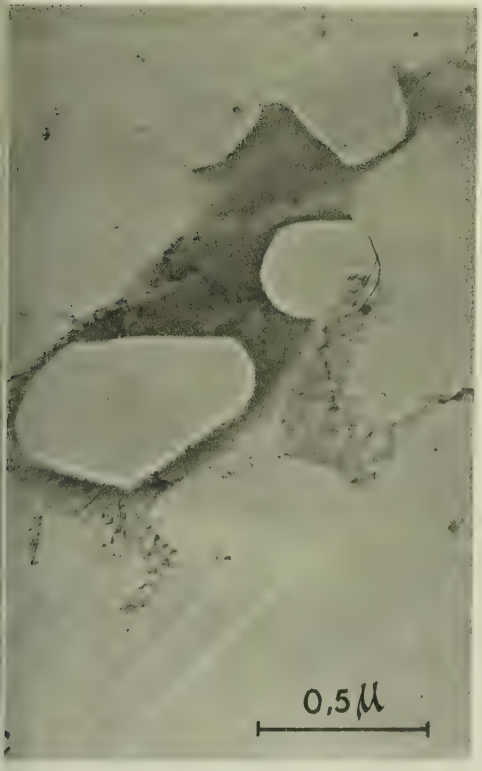
Fig. b. — Couche mince d'aluminium évaporé, partiellement oxydée; image filtrée ΔE = 14,6 ± 1,5 eV; V = 70 kV; × 45 000.

Fig. c. — Couche mince d'aluminium évaporé, partiellement oxydée; image filtrée ΔE = 21,4 ± 1,5 eV; V = 70 kV; × 45 000.

Fig. d. — Aluminium-cuivre à 4 %, recuit 14 heures à 250°C; poli électrolytiquement; spectre de pertes d'énergie « surimprimé » sur l'image; V = 70 kV.


0,5 μ
a

0,5 μ
b


0,5 μ

eV
d 0 15 30 45

Planche III

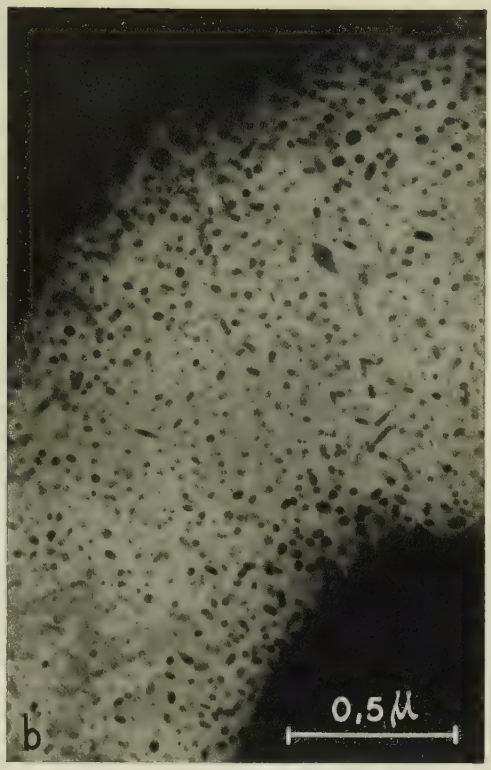
Fig. a. — Alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 %, aminci électrolytiquement; image filtrée sans pertes; V = 70 kV; × 45 000.

Fig. b. — Alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 %, aminci électrolytiquement; image filtrée $\Delta E = 14{,}6 \pm 1$ eV; V = 70 kV; × 45 000.

Fig. c. — Alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 %, aminci électrolytiquement; image filtrée 20 eV $< \Delta E < 25$ eV; V = 70 kV; × 45 000.

Fig. d. — Alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 %, aminci électrolytiquement; spectre de pertes d'énergie « surimprimé » sur l'image; V = 70 kV.

0,5 μ


b
0,5 μ

0,5 μ

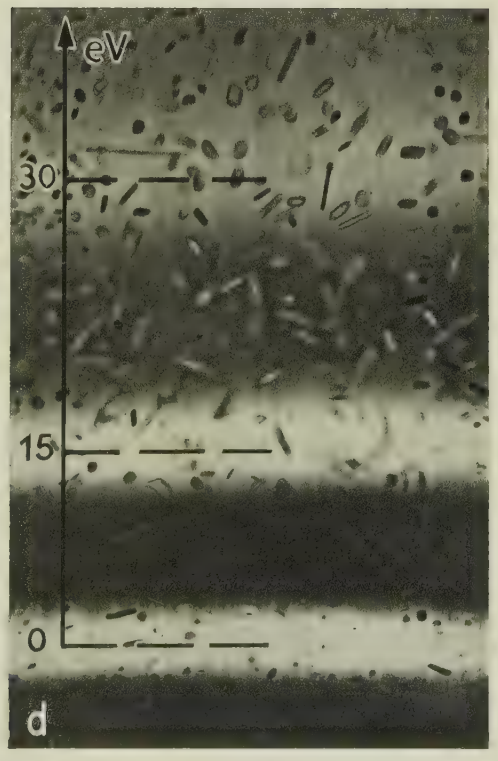
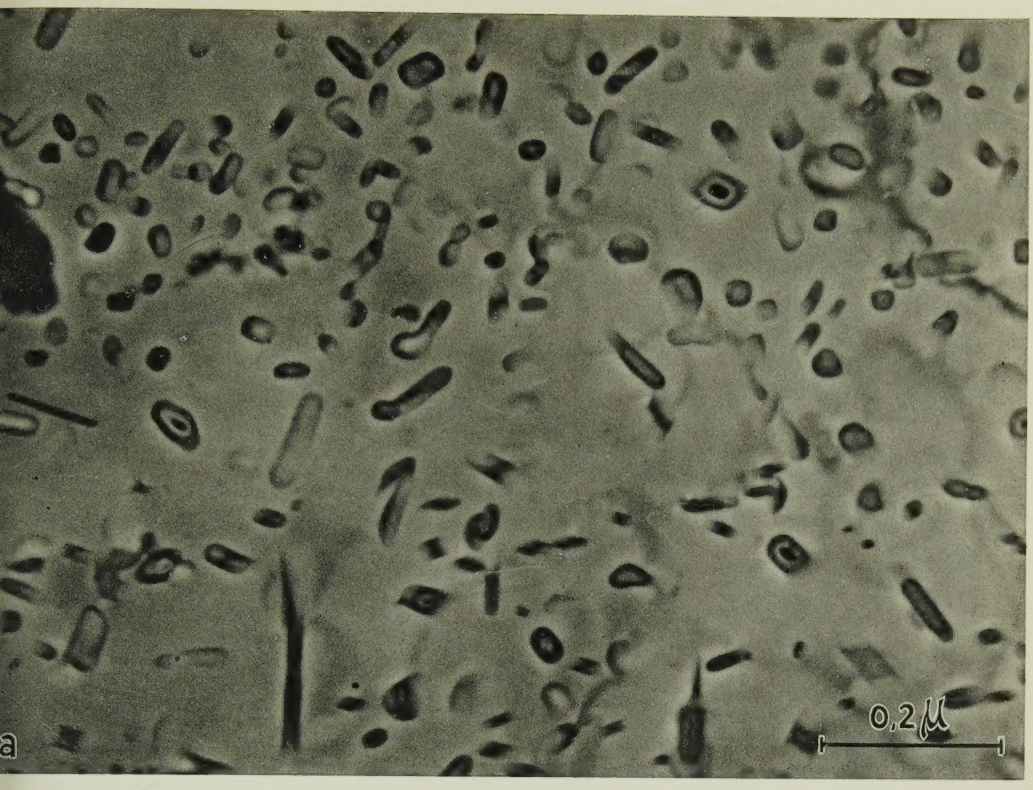
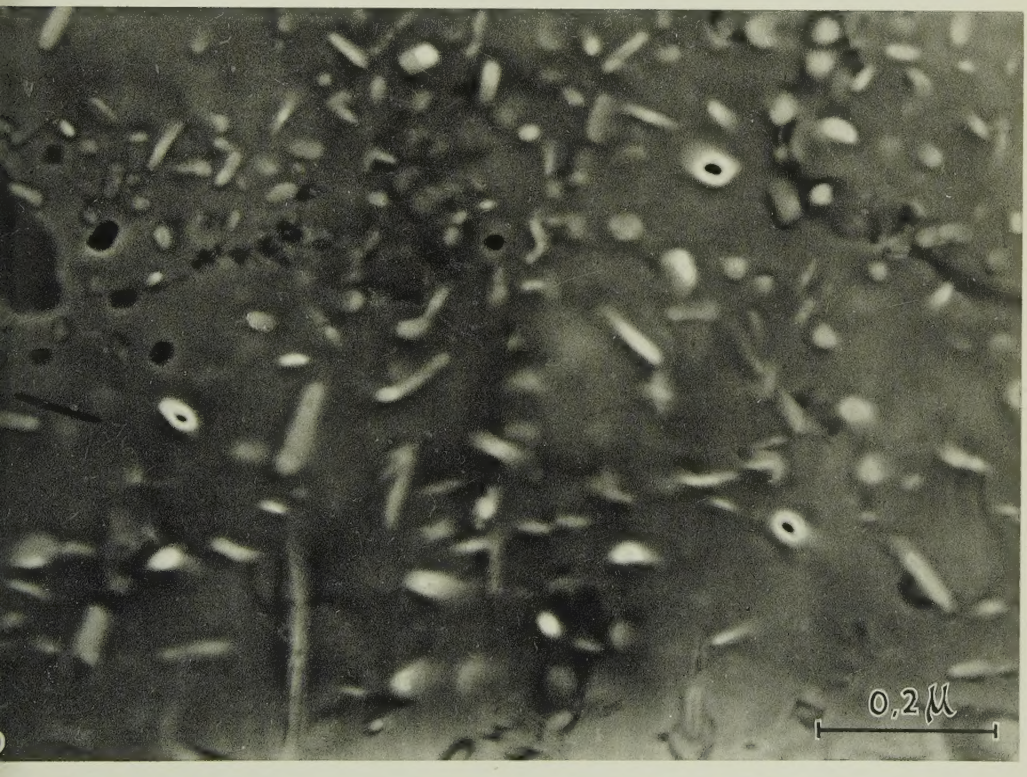

eV
30
15
0
d

Planche IV

Fig. a. — Alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 %, aminci électrolytiquement ; image filtrée $\Delta E = 14{,}6 \pm 1$ eV ; V = 70 kV ; × 120 000.

Fig. b. — Alliage Al-Zn 7,6 % - Mg 2,6 %, aminci électrolytiquement ; image filtrée 20 eV $< \Delta E < 25$ eV ; V = 70 kV ; × 120 000.


a
0,2 μ


0,2 μ

INSTRUCTIONS AUX AUTEURS

MANUSCRITS. Les manuscrits doivent être envoyés à la Société Française de Microscopie Electronique, 24, rue Lhomond, PARIS (5e), **en double exemplaire.**

Bien que la langue officielle soit le *français*, le journal accepte des articles en *anglais* ou en *allemand*.

Les manuscrits doivent être dactylographiés en double interligne.
Les mémoires ne peuvent en général dépasser 20 pages imprimées, soit 50 000 caractères environ. Les lettres à l'éditeur : deux pages imprimées, soit 5 000 caractères.

ILLUSTRATIONS PHOTOGRAPHIQUES. Les photographies sont reproduites sur des planches hors texte par phototypie sur papier pellicule; celles-ci sont placées à la fin de l'article; la justification des planches est de 140 × 210 mm. Elles sont numérotées en chiffres romains, si une planche comporte plusieurs micrographies, celles-ci sont désignées par les lettres : a, b, c, etc... à l'intérieur de chaque planche. Il est demandé aux auteurs de faire parvenir deux jeux des photographies : un jeu où les photographies sont assemblées et lettrées selon les désirs de l'auteur. un second jeu non monté, non noté et non lettré. Le montage des planches et le lettrage sont faits par les éditeurs, ceci afin de rendre plus homogène la présentation des documents. Le journal offre quatre planches hors texte gratuites par mémoire. Les lettres à l'éditeur ne comportent qu'une planche gratuite. Les planches supplémentaires sont aux frais de l'auteur au prix de 300 F chacune.

FIGURES AU TRAIT. Les figures et schémas au trait ainsi que leurs légendes sont reproduits dans le texte et leur place doit être indiquée sur le manuscrit. Elles sont numérotées en chiffres arabes.

BIBLIOGRAPHIE. Les références des auteurs cités dans le texte sont placées à la fin de l'article et disposées par ordre alphabétique. Elles peuvent alors être numérotées pour faciliter les renvois du texte à la bibliographie.

Le journal, le volume, la première et la dernière page ainsi que le titre de l'article doivent être indiqués.

La ponctuation doit être placée selon le modèle :

1. FAURÉ-FREMIET E., 1961. Le cytoplasme stomo-pharyngien des Ciliés cyrtophores *C.R. Ac. Sc.*, **253**, 357-362.

2. GIBBONS I.R. et GRIMSTONE A.V., 1960. On flagellar structure in certain flagellates *J. Biophys. Biochem. Cytol.*, **7**, 697-716.

3. WIESENBERGER E., 1958. Die Anwendung Mikrochemischer Nachweisverfahren in der Electronenmikroskopie. *Quatrième Congrès International de Microscopie Electronique*, Springer éd., Berlin. **I**, 769-779.

RÉSUMÉS. Il est demandé deux résumés : *un résumé en français et un autre en anglais* qui sont placés à la fin de l'article. Chacun de ces résumés ne doit pas dépasser une quinzaine de lignes soit 1 000 caractères environ. Il n'est pas demandé de résumé pour les lettres à l'éditeur.

TIRÉS A PART. En même temps que l'envoi de son manuscrit, il est demandé à l'auteur de préciser le nombre de tirés à part désiré. Ceux-ci lui sont facturés au prix coûtant. Pour des raisons techniques dues au procédé de reproduction par phototypie, le nombre de tirés à part ne peut être inférieur à 200. Au-delà de ce nombre les tirés à part sont fournis par multiple de 100.

IMPRIMERIE LOUIS JEAN · GAP